

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-007313

(43)Date of publication of application : 10.01.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
C08K 3/00
C08L 23/26
C08L 83/04
C08L 83/05
H01M 8/10

(21)Application number : 2001-189947

(71)Applicant : SHIN ETSU CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 22.06.2001

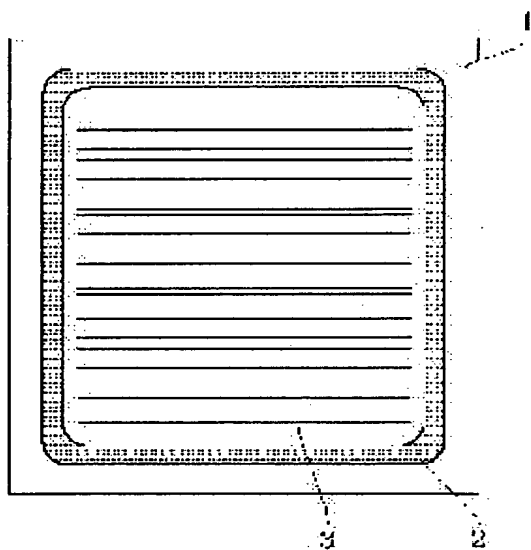
(72)Inventor : NAKAMURA TSUTOMU
MEGURIYA NORIYUKI
FUJIKI HIRONAO

(54) RUBBER COMPOSITION FOR SOLID HIGH POLYMER FUEL CELL SEPARATOR, SEALING MATERIAL USING THE SAME, AND SOLID HIGH POLYMER FUEL CELL SEPARATOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a sealing material which can be used for a long period, and is useful for sealing material of a solid high polymer fuel cell separator, and superior in acid resistance, weather resistance, creep resistance, and gas permeability.

SOLUTION: The rubber composition sealing at least a single circumference edge of the solid high polymer fuel cell separator includes the following components (A)-(D): (A) a polysobutylenepolymer having an allyl group to at least a single end; (B) an organopolysiloxane indicated by a mean composition formula: $R_1nSiO(4-n)/2$; (C) an organohydrogenpolysiloxane having at least 2 hydrogen atoms coupled with a silicon atom in one molecule; (D) a platinum group metallic catalyst. The sealing material for the solid high polymer fuel cell separator is obtained by curing the rubber composition.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-7313

(P2003-7313A)

(43)公開日 平成15年1月10日(2003.1.10)

(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード*(参考)

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

S 4 J 0 0 2

B 5 H 0 2 6

C 0 8 K 3/00

C 0 8 K 3/00

C 0 8 L 23/26

C 0 8 L 23/26

83/04

83/04

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2001-189947(P2001-189947)

(22)出願日 平成13年6月22日(2001.6.22)

(71)出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72)発明者 中村 勉

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10

信越化学工業株式会社シリコン電子材料

技術研究所内

(74)代理人 100079304

弁理士 小島 隆司 (外1名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物及びこれを用いたシール材並びに固体高分子型燃料電池セパレータ

(57)【要約】

【解決手段】固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部をシールするシール用ゴム組成物であって、

(A) 少なくとも片末端にアシル基を有するポリイソブチレンポリマー、

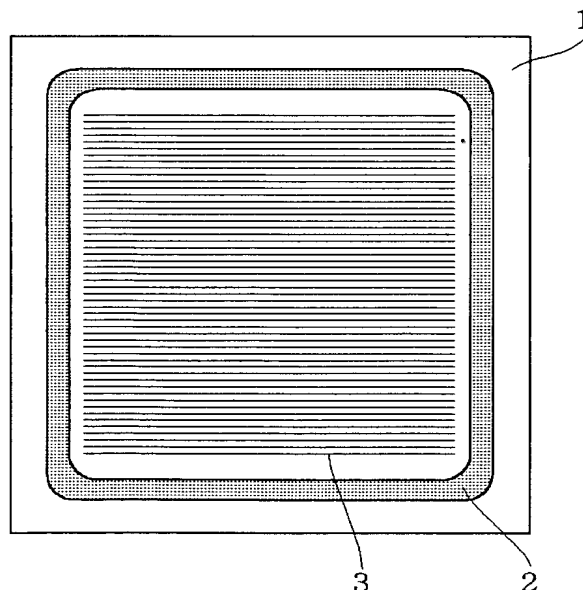
(B) 平均組成式 $R^{1-n}SiO_{(4-n)/2}$ で示されるオルガノポリシロキサン

(C) 1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン

(D) 白金族金属系触媒

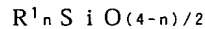
を含有することを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物、及びこれを硬化させてなる固体高分子型燃料電池セパレータシール材を提供する。

【効果】 本発明のゴム組成物を用いることにより、耐酸性に優れ、かつ耐候性、耐クリープ性、ガス透過性に優れたシール材が得られる。このシール材は、長期の使用が可能であり、固体高分子型燃料電池セパレータシール材として有用である。

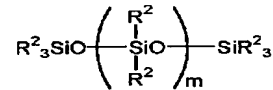


【特許請求の範囲】

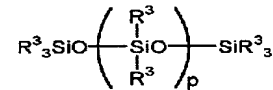
【請求項 1】 固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部をシールするシール用ゴム組成物であ *



(式中、 R^1 は非置換又は置換の一価炭化水素基を示し、同一であっても異なってもよい。 n は、1. 9 ~ 2. 1 の正数である。) で示されるオルガノポリシロキサンを (A) 成分: (B) 成分 = 100: 0 ~ 5: 95 (重量比) の割合で含有し、かつ (C) 1 分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン: ケイ素原子に結合した水素原子を、(A) 成分及び (B) 成分中の脂肪 *



(式中、 R^2 は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも 2 個は水素原子であり、かつ R^2 の 5 モル % 以上はフェニル基である。 m は、 $0 \leq m \leq 100$ を満たす整数である。) で示される構造であることを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池セパレータシール *



(式中、 R^3 は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも 2 個は水素原子である。 p は、 $0 \leq p \leq 10$ を満たす整数である。) で示される構造であることを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物。

【請求項 4】 ゴム組成物が射出成形可能であることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項記載の固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物。

【請求項 5】 請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項記載のゴム組成物の硬化物からなる固体高分子型燃料電池セパレータシール材。

【請求項 6】 金属薄板の少なくとも片面の周縁部に、シール部として請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項記載のゴム組成物の硬化物を射出成形法により形成させてなる固体高分子型燃料電池セパレータ。

【請求項 7】 導電性粉末とバインダーとを含む基材の少なくとも片面の周縁部に、シール部として請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項記載のゴム組成物の硬化物を射出成形法又は圧縮成形法により形成させてなる固体高分子型燃料電池セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、小型の燃料電池と

※って、(A) 少なくとも片末端にアリル基を有するポリイソブチレンポリマー、(B) 下記平均組成式 (1)

(1)

※族不飽和結合 1 個当たり 0. 2 ~ 10 個与える量、(D) 白金族金属系触媒: 触媒量を含有することを特徴とする固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物。

【請求項 2】 (C) 成分の 1 分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、下記一般式 (2)

【化 1】

(2)

★ル用ゴム組成物。

【請求項 3】 (C) 成分の 1 分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、下記一般式 (3)

【化 2】

(3)

して使用できる固体高分子型燃料電池のセパレータシール用ゴム組成物に係わり、特に長期の使用が可能で、成形性にも優れた固体高分子型燃料電池セパレータシール材を与えるゴム組成物及びこれを用いたシール材並びに固体高分子型燃料電池セパレータに関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】 燃料電池は、資源の枯渇に留意する必要がある化石燃料を使用する必要が殆どない上に、発電において騒音を殆ど発生せず、エネルギーの回収率も他のエネルギー発生機関と比べて高くできる等の優れた性質を持つために、ビルや工場の比較的小型の発電プラントとして開発が進められ、一部実用化している。中でも固体高分子燃料電池は、他のタイプの燃料電池と比べて低温で作動するので、電池を構成する部品について材料面での腐食の心配が少ないばかりか、低温作動の割に比較的大電流を放電可能といった特徴をもち、家庭のコージェネレーション用としてだけでなく、車載用の内燃機関の代替電源としても注目を集めている。

【0003】 この固体高分子型燃料電池を構成する部品の中で、セパレータは、一般に平板の両面又は片面に複数の並行する溝を形成してなるもので、燃料電池セル内のガス拡散電極で発生した電気を外部へ伝達すると共に、発電の過程で前記溝中に生成した水を排水し、当該

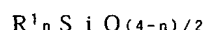
3

溝を燃料電池セルへ流入する反応ガスの流通路として確保するという役割を担っている。このような電池用のセパレータとしては、より小型化が要求され、また多数のセパレータを重ね合わせて使用することから、耐久性が優れ、長期間使用できるセパレータシール材が要求されている。

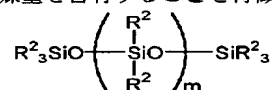
【0004】このようなセパレータシール材としては各種樹脂からなるシール材が検討されているが、成型性、耐熱性、弾性に優れたシリコンゴム製のパッキング材が主に使用されている。しかしながら、シリコン製シール材は、酸性であるイオン交換樹脂に接触した場合、分解してその信頼性が悪くなる不具合が発生していた。

【0005】本発明は、上記の問題に鑑みなされたものであり、耐酸性に優れ、長期間使用できるシール材を与える固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物及びこれを用いたシール材並びに固体高分子型燃料電池セパレータを提供することを目的とする。

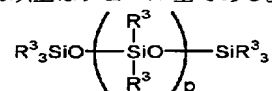
【0006】



(式中、 R^1 は非置換又は置換の一価炭化水素基を示し、同一であっても異なってもよい。 n は1.9～2.1の正数である。)で示されるオルガノポリシロキサンを(A)成分:(B)成分=100:0～5:95(重量比)の割合で含有し、かつ(C)1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン:ケイ素原子に結合した水素原子を、(A)成分及び(B)成分中の脂肪族不飽和結合1個当たり0.2～10個与える量、(D)白金族金属系触媒:触媒量を含有することを特徴とする固*



(式中、 R^2 は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも2個、好ましくは3個以上は水素原子であり、全 R^2 の5モル%以上はフェニル基である。 m は、★



(式中、 R^3 は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも2個、好ましくは3個以上は水素原子である。 p は、 $0 \leq p \leq 10$ を満たす整数である。)で示される構造であることが好ましく、ゴム組成物が射出成形可能であることが好ましい。

【0011】また、本発明は、固体高分子型燃料電池セパレータとして、金属薄板の少なくとも片面の周縁部に、シール部として上記ゴム組成物の硬化物を射出成形

4

*【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】本発明者は、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、ベースポリマーとして少なくとも片末端にアリル基を有するポリイソブチレンポリマーを単独で、又はこれと下記一般式(1)で示されるオルガノポリシロキサンを特定比率で併用すると共に、1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサン、及び白金族金属系触媒を配合したオレフィン系ゴム組成物を用いることにより、耐酸性に優れ、かつ耐候性、耐クリープ性、ガス透過性に優れたシール材が得られることを知見し、本発明をなすに至った。

10

【0007】従って、本発明は、固体高分子型燃料電池セパレータの少なくとも片側周縁部をシールするシール用ゴム組成物であって、(A)少なくとも片末端にアリル基を有するポリイソブチレンポリマー、(B)下記平均組成式(1)

(1)

20 ※体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物、及びこれを硬化させてなる固体高分子型燃料電池セパレータシール材を提供する。

【0008】上記固体高分子型燃料電池セパレータシール用ゴム組成物にあっては、特に、ゴム組成物中の(C)成分の1分子中にケイ素原子に結合した水素原子を少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンが、下記一般式(2)

【0009】

【化3】

(2)

★ $0 \leq m \leq 100$ を満たす整数である。)若しくは下記一般式(3)

【0010】

【化4】

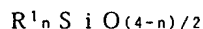
(3)

法により形成させてなるもの、又は導電性粉末とバインダーとを含む基材の少なくとも片面の周縁部に、シール部として上記ゴム組成物の硬化物を射出成形法又は圧縮成形法により形成させてなるものを提供する。

【0012】以下、本発明につき更に詳しく説明する。本発明のゴム組成物中の(A)成分は、少なくとも片末端、好ましくは両末端にアリル基を有する、好ましくは数平均分子量が1,000～100,000、特に好ましくは5,000～20,000のポリイソブチレンポ

50

リマーである。ポリイソブチレンの分子末端に存在するアリル基を硬化反応させることにより、優れた耐候性、低透湿性が発現する。また、このポリイソブチレンポリマーは、25℃における粘度が10~10,000Pa・s



(式中、R¹は非置換又は置換一価炭化水素基を示し、同一であっても異なってもよい。nは1.9~2.1の正数である。)で示されるオルガノポリシロキサンである。

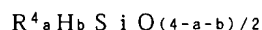
【0014】上記式(1)中、R¹は非置換又は置換の一価炭化水素基を示すが、通常、炭素数1~10、特に1~8のものが好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基等のアルキル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基等のアルケニル基、シクロヘキセニル基等のシクロアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリアル基、ベンジル基、フェニルエチル基等のアラール基、或いはこれらの基の水素原子の一部又は全部が塩素原子、フッ素原子、シアノ基で置換されたハロゲン化炭化水素基、シアノ化炭化水素基等が例示される。

【0015】一般的には、該オルガノポリシロキサンの主鎖がジメチルシロキサン単位からなるもの、又はこのジメチルシロキサン単位からなるオルガノポリシロキサンの主鎖の一部にフェニル基、ビニル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基等を導入したジフェニルシロキサン単位、メチルビニルシロキサン単位、メチルー3,3,3-トリフルオロプロピルシロキサン単位等を有するものが好適である。

【0016】特に、(B)成分のオルガノポリシロキサンは、1分子中に2個以上のアルケニル基、シクロアルケニル基等の脂肪族不飽和基を有するものが好ましく、この脂肪族不飽和基としては、特にビニル基が好ましい。また、全R¹中0.01~20モル%、特に0.02~10モル%がかかる脂肪族不飽和基であることが好ましい。

【0017】なお、この脂肪族不飽和基は、分子鎖末端のケイ素原子に結合していても、分子鎖の途中のケイ素原子に結合していても、その両方に結合していてもよいが、少なくとも分子鎖両末端のケイ素原子に結合している脂肪族不飽和基を含有するものであることが好ましい。なお、nは1.9~2.1の正数であり、好ましくは1.95~2.05の正数である。

【0018】本発明に用いるオルガノポリシロキサン ※



で示されるものを用いることができる。

【0022】上記式(4)中、R⁴は非置換又は置換の一価炭化水素基を示し、同一であっても異なってもよく、R¹と同様のものを挙げることができるが、脂肪族不飽和結合を除いたものであることが好ましい。通

*・S、特に50~5,000Pa・sであることが好ましい。

【0013】本発明のゴム組成物中の(B)成分は下記平均組成式(1)

(1)

※は、分子鎖末端がトリメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、ジメチルヒドロキシシリル基、ジメチルビニルシリル基、トリビニルシリル基等のトリオルガノシロキシ基で封鎖されたものを好ましく挙げることができる。特に好ましいものとしては、メチルビニルポリシロキサン、メチルフェニルビニルポリシロキサン、メチルトリフルオロプロピルビニルポリシロキサン等を挙げることができる。

【0019】このようなオルガノポリシロキサンは、例えばオルガノハロゲノシランの1種又は2種以上を

(共)加水分解縮合することにより、或いは環状ポリシロキサン(シロキサンの3量体、4量体等)をアルカリ性又は酸性の触媒を用いて開環重合することによって得ることができる。これらは基本的には直鎖状のジオルガノポリシロキサンであることが好ましいが、分子構造の異なる2種又は3種以上の混合物であってもよい。なお、上記オルガノポリシロキサンの粘度は25℃で100センチストークス(cSt)以上が好ましく、特に好ましくは100,000~100,000,000cStである。また、上記オルガノポリシロキサンの平均重合度は100以上が好ましく、特に好ましくは3,000~20,000である。

【0020】本発明において、(A)成分のポリイソブチレンポリマーと(B)成分の好ましくは脂肪族不飽和基を含有するオルガノポリシロキサンの比は、重量比で(A)成分:(B)成分=100:0~5:95の割合、好ましくは100:0~60:40、特に好ましくは100:0~70:30の割合である。なお、(B)成分を配合する場合、(A):(B)=99:1以下、特に95:5以下であることが好ましい。

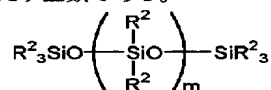
【0021】本発明のゴム組成物中の(C)成分は1分子中にケイ素原子に結合した水素原子(SiH基)を少なくとも2個、好ましくは3個以上有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンである。このオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、直鎖状、環状、分枝状、三次元の網状構造のいずれであってもよく、付加反応硬化型シリコーンゴム組成物の架橋剤として公知なオルガノハイドロジェンポリシロキサンを使用することができ、通常、下記平均組成式(4)

(4)

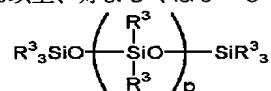
常、炭素数1~12、特に1~8のものが好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリアル基、ベンジル

臭

基、2-フェニルエチル基、2-フェニルプロピル基等のアラルキル基、或いはこれらの基の水素原子の一部又は全部をハロゲン原子で置換した基、例えば3, 3, 3-トリフルオロプロピル基等が挙げられる。なお、a及びbは0.7 ≤ a ≤ 2.2、0.002 ≤ b ≤ 1.0、8 ≤ a + b ≤ 3を満たす正数である。

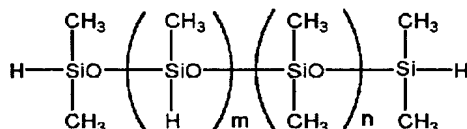
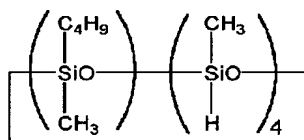
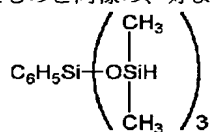


(式中、R²は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも2個、好ましくは3個以上は水素原子であり、全R²の5モル%以上、好ましくは5～50モル% ※



(式中、R³は水素原子、又は非置換若しくは置換の一価炭化水素基を示し、同一でも異なってもよいが、少なくとも2個、好ましくは3個以上は水素原子である。pは、0 ≤ p ≤ 10を満たす整数である。)

【0026】なお、R²、R³の一価炭化水素基の具体例としては、R⁴で説明したものと同様の、好ましくは脂 ★



(式中、kは2～10の整数、m及びnは0～10の整数である。)

【0028】本発明のオルガノハイドロジェンポリシロキサンは、SiH基を1分子中に2個以上、好ましくは3個以上有するが、これは分子鎖末端にあっても、分子鎖の途中にあっても、その両方にあってもよい。また、このオルガノハイドロジェンポリシロキサンは25℃における粘度が0.5～10,000cSt、特に1～300cStであることが好ましい。

*【0023】このようなオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、下記一般式(2)又は一般式(3)で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサンが好適に用いられるが、これに限定されるものではない。

【0024】

【化5】

(2)

※はフェニル基である。mは、0 ≤ m ≤ 100、好ましくは0 ≤ m ≤ 20を満たす整数である。)

【0025】

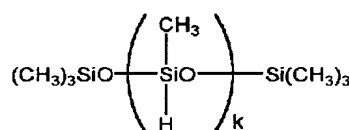
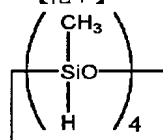
【化6】

(3)

★脂肪族不飽和結合を除く、炭素数1～12、特に1～8のものを挙げることができる。このようなオルガノハイドロジェンポリシロキサンとしては、具体的には下記構造式の化合物を例示することができる。

【0027】

【化7】



【0029】上記オルガノハイドロジェンポリシロキサンの配合量は、ケイ素原子に結合した水素原子(SiH基)を、(A)成分及び(B)成分中の脂肪族不飽和結合(例えば、アルケニル基、ジエン基等)1個に対し、0.2～10個、好ましくは0.5～10個、特に好ましくは0.7～5個与える量である。0.2より少ないと架橋が十分でなく、十分な機械的強度が得られず、10より多いと硬化後の物理特性が低下し、特に耐熱性が著しく低下し、圧縮永久歪が大きくなる。更に、上記オ

鉈

ルガノハイドロジェンポリシロキサンは、

(A)成分と(B)成分との合計100重量部に対し0.1~40重量部となるのが好ましい。

【0030】本発明のゴム組成物中の(D)成分である白金族金属系触媒は、(A)成分及び(B)成分の脂肪族不飽和結合(例えば、アルケニル基、ジエン基等)とオルガノハイドロジェンポリシロキサンのケイ素原子に結合した水素原子を付加反応させるための触媒である。白金族金属系触媒としては白金族の金属単体とその化合物があり、これには従来、付加反応硬化型シリコンゴム組成物の触媒として公知のものが使用できる。例えば、シリカ、アルミナ又はシリカゲルのような担体に吸着させた微粒子状白金金属、塩化第二白金、塩化白金酸、塩化白金酸の6水塩のアルコール溶液、パラジウム触媒、ロジウム触媒等が挙げられるが、白金又は白金化合物が好ましい。

【0031】触媒の添加量は、付加反応を促進できればよく、触媒量であり、通常、白金系金属量に換算して、好ましくは1ppm~1重量%、特に好ましくは10~100ppmの範囲で使用される。1ppm未満では付加反応が十分促進されず、硬化、発泡が不十分となる場合があり、1重量%を超えると、反応性に対する効果が変わらなくなる場合があり、不経済となる恐れがある。

【0032】本発明のゴム組成物には、上述した成分に加えて、硬化速度を調整する目的で、付加架橋制御剤を使用してもよい。この付加架橋制御剤として具体例には、エチルシクロヘキサノールやテトラシクロメチルビニルポリシロキサン等が挙げられる。

【0033】また、必要に応じて硬化物の物性を調整するための任意成分、例えばヒュームドシリカ、沈降性シリカ、アルミニウムシリケート、石英粉末、熔融石英粉末、珪藻土、タルク、クレイ、炭酸カルシウム、二酸化チタン等の充填剤、カーボンブラック等の導電性付与剤、酸化鉄やハロゲン化合物のような難燃性付与剤、軟化剤、老化防止剤、紫外線吸収剤、着色剤などを添加することができる。なお、充填剤の場合、配合量は(A)成分及び(B)成分の合計100重量部に対して500重量部以下(即ち、0~500重量部)、好ましくは1~250重量部、更に好ましくは5~100重量部とするのがよい。500重量部より多いと硬化物が硬くて脆いものになる場合がある。

【0034】更に、本発明のゴム組成物は、上述した成分の所定量を2本ロール、ニーダー、バンバリーミキサー等で混練りすることによって得ることができるが、この際、必要に応じて、炭化水素系の合成油、鉱物油系軟化剤、例えば流動パラフィン、ルーカントHC40〔三井化学(株)製〕、PW-380〔出光興産(株)製〕等を添加すると、組成物の粘度が下がって加工性を向上させることができる。

【0035】本発明においては、上記ゴム組成物を、所

定のシール形状に成形し硬化させることにより、ポリオレフィン系ゴムの固体高分子型燃料電池セパレータシール材を得ることができるが、特に、射出成形により成形することが好ましい。この場合、ゴム組成物の粘度は50~50,000Pa・S、特に100~10,000Pa・Sが好ましい。また、硬化条件としては、一般的に温度100~300℃で0.5~30分の条件で硬化させることが望ましい。また必要に応じて二次加硫を行ってもよい。

【0036】また、本発明においては、金属薄板の周縁部にゴム組成物を射出成形して硬化させることにより、図1に示すような、ポリオレフィン系ゴム組成物の硬化物をシール部として用いた、基材(金属薄板)1の周縁部に周方向に沿ってリング状にシール部(シール材)2を形成した固体高分子型燃料電池セパレータを得ることができる。なお、図中3はガス流路を示す。射出成形法としては、金属薄板を金型内に保持し、ゴム組成物を射出成形するいわゆるインサート成形が好ましい。射出成形により得られるシール材の厚さ(高さ)は0.1~2mmの範囲が好ましい。0.1mm未満では射出成形がしにくい場合があり、シールが有効でなくなる恐れがあり、2mmを超えると小型化しづらくなる恐れがある。

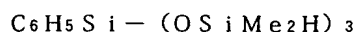
【0037】また、本発明においては、ゴム組成物を導電性粉末とバインダーとを含む基材の周縁部に射出成形又は圧縮成形して硬化させることにより、ポリオレフィン系ゴム組成物の硬化物を用いた固体高分子型燃料電池セパレータを得ることもできる。上記基材は、導電性粉末とバインダーと共に形成された燃料電池セパレータ基材であるが、導電性粉末としては、例えばリン片状黒鉛等の天然黒鉛、人造黒鉛、アセチレンブラック、ケッチェンブラック等に代表される導電性カーボンブラック等を挙げることができるが、導電性粉末であれば特に限定されるものではない。また、バインダーの種類としては、エポキシ樹脂やゴム変性フェノール樹脂が挙げられる。なお、射出成形の方法、及びシール材の厚さは、上述の金属薄板への成形時と同様である。

【0038】

【実施例】以下、実施例及び比較例を示し、本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に制限されるものではない。なお、以下の例において部はいずれも重量部である。

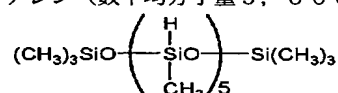
【0039】〔実施例1〕分子鎖両末端にアシル基が導入されたポリイソブチレン(数平均分子量5,000、粘度60Pa・S)を100部、比表面積が200m²/gのシリカ〔アエロジル200:日本アエロジル(株)製〕20部を、ニーダーを用いて100℃で3時間混練し、ゴムコンパウンドを作製した。

【0040】次に、得られた上記ゴムコンパウンドに下記式(i)



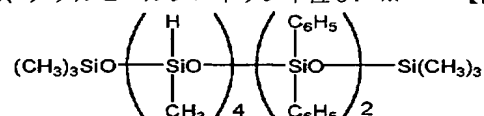
(式中、Meはメチル基を表す。)で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン1.5部、付加架橋制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.06部、塩化白金酸の5%イソプロピルアルコール溶液0.05部を2本ロールにて添加後、この組成物を、プレスを用いて150℃、10分のプレスキュアを行い、1mm厚のシートを得た。このシートから30mm×30mmの試験片を切り出し、10%硫酸水溶液中に100℃で500時間浸漬した後の重量変化より耐酸性を測定した。結果を表1に示す。

【0041】〔実施例2〕分子鎖両末端にアリル基が導入されたポリイソブチレン(数平均分子量5,000、*



で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン1.5部、付加架橋制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.06部、塩化白金酸の5%イソプロピルアルコール溶液0.05部を2本ロールにて添加後、この組成物を、プレスを用いて150℃、10分のプレスキュアを行い、1mm厚のシートを得、実施例1と同様に耐酸性を測定した。結果を表1に示す。

【0043】〔実施例3〕分子鎖両末端にアリル基が導入されたポリイソブチレン(数平均分子量5,000、粘度60Pa・S)を100部、ジメチルシロキサン単位99.85モル%、メチルビニルシロキサン単位0.※



で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン2.0部、付加架橋制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.06部、塩化白金酸の5%イソプロピルアルコール溶液0.05部を2本ロールにて添加後、この組成物を、プレスを用いて150℃、10分のプレスキュアを行い、1mm厚のシートを得、実施例1と同様に耐酸性を測定した。結果を表1に示す。

【0045】〔比較例1〕ジメチルシロキサン単位99.85モル%、メチルビニルシロキサン単位0.125モル%、ジメチルビニルシロキサン単位0.025モル%からなり、平均重合度が約8,000であるオルガノポリシロキサン100部、比表面積が200m²/gのシリカ〔アエロジル200：日本アエロジル(株)製〕20部、両末端がヒドロキシジメチルシロキシ基で

(i)

*粘度60Pa・S)を100部、ジメチルシロキサン単位99.85モル%、メチルビニルシロキサン単位0.125モル%、ジメチルビニルシロキサン単位0.025モル%からなり、平均重合度が約8,000であるオルガノポリシロキサン10部、比表面積が200m²/gのシリカ〔アエロジル200：日本アエロジル(株)製〕20部を、ニーダーを用いて100℃で3時間混練し、ゴムコンパウンドを作製した。次に、得られた上記ゴムコンパウンドに下記式(ii)

【0042】

【化8】

(ii)

※125モル%、ジメチルビニルシロキサン単位0.025モル%からなり、平均重合度が約8,000であるオルガノポリシロキサン30部、比表面積が200m²/gのシリカ〔アエロジル200：日本アエロジル(株)製〕20部、両末端がヒドロキシジメチルシロキシ基で封鎖された平均重合度5のジメチルポリシロキサン5部を、ニーダーを用いて100℃で3時間混練し、ゴムコンパウンドを作製した。次に、得られた上記ゴムコンパウンドに下記式(iii)

【0044】

【化9】

(iii)

封鎖された平均重合度5のジメチルポリシロキサン5部を、ニーダーを用いて100℃で3時間混練し、ゴムコンパウンドを作製した。

【0046】次に、得られた上記ゴムコンパウンドに上記式(i)で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン2.0部、付加架橋制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.06部、塩化白金酸の5%イソプロピルアルコール溶液0.05部を2本ロールにて添加後、この組成物を、プレスを用いて150℃、10分のプレスキュアを行い、1mm厚のシートを得、実施例1と同様に耐酸性を測定した。結果を表1に示す。

【0047】

【表1】

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
重量変化(%)	-1.8	-2.1	-3.4	-24.6

【発明の効果】本発明のゴム組成物を用いることにより、耐酸性に優れ、かつ耐候性、耐クリープ性、ガス透過性に優れたシール材が得られる。このシール材は、長期の使用が可能であり、固体高分子型燃料電池セパレータシール材として有用である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の固体高分子型燃料電池セパレータの一

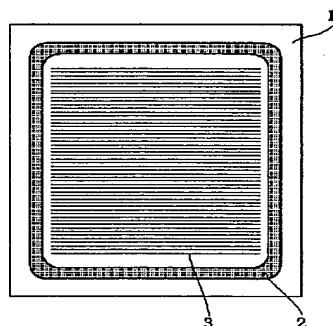
例を示す平面図である。

【図2】同固体高分子型燃料電池セパレータの一例を示す断面図である。

【符号の説明】

- 1 基材（金属薄板）
- 2 シール部（シール材）
- 3 ガス流路

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

C 0 8 L 83/05

H 0 1 M 8/10

識別記号

F I

C 0 8 L 83/05

H 0 1 M 8/10

ターマコード（参考）

(72)発明者 廻谷 典行

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10
信越化学工業株式会社シリコン電子材料
技術研究所内

(72)発明者 藤木 弘直

群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10
信越化学工業株式会社シリコン電子材料
技術研究所内

F ターム（参考） 4J002 BB18W BB20W CP03X CP04Y

DA116 DD076 FD010 FD110

FD130 GJ02 GQ00

5H026 AA06 EE18 HH00